

## PRODUCTION OF AROMATIC POLYESTER RESIN COMPOSITION

**Veröffentlichungsnummer** JP1174555

**Veröffentlichungsdatum:** 1989-07-11

**Erfinder:** KARASAWA HIROO; OKITA KIYOMI; YONETANI  
KIICHI

**Anmelder:** TORAY INDUSTRIES

**Klassifikation:**

**- Internationale:** C08L67/00; C08K3/00; C08L3/00; C08L5/04;  
C08L67/02; C08L67/00; C08K3/00; C08L3/00;  
C08L5/00; (IPC1-7): C08L3/00; C08L5/04;  
C08L67/00

**- Europäische:**

**Anmeldenummer:** JP19870335025 19871228

**Prioritätsnummer(n):** JP19870335025 19871228

**Datenfehler hier melden**

### Zusammenfassung von JP1174555

**PURPOSE:** To obtain the subject composition suitable for machine working part, etc., having excellent mechanical strength, resistance to heat cycle and resistance to hydrolysis, by melting and mixing aromatic polyester, epoxy compound and inorganic filler, and thereafter mixing with a specific modified ethylene-base copolymer. **CONSTITUTION:** (A) 100pts.wt. aromatic polyester having 1.15-2 relative viscosity (e.g., polyethylene terephthalate), (B) 1-120pts.wt. inorganic filler (e.g., glass fiber) and (C) 0.01-10pts.wt. epoxy compound are blended, molten and mixed, and thereafter (D) 1-70pts.wt. a modified ethylene-base copolymer obtained by graft copolymerizing 0.01-10wt.% unsaturated carboxylic acid (derivative) onto ethylene-base copolymer, is blended, molten and mixed.

Daten sind von der **esp@cenet** Datenbank verfügbar - Worldwide

## ⑪ 公開特許公報 (A) 平1-174555

|   |                                 |   |                     |
|---|---------------------------------|---|---------------------|
| ⑤Int.Cl.<br>C 08 L 67/00                          | 識別記号<br>L P B<br>K J Q<br>K J U | 庁内整理番号<br>7224-4J<br>7224-4J<br>7224-4J | ③公開 平成1年(1989)7月11日 |
| // C 08 L 3/00<br>5/04<br>(C 08 L 67/00<br>51:06) |                                 |   |                     |

審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

④発明の名称 芳香族ポリエスチル樹脂組成物の製造方法

②特願 昭62-335025  
②出願 昭62(1987)12月28日

⑦発明者 唐澤 啓夫 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社名古屋事業場内

⑦発明者 興田 清己 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社名古屋事業場内

⑦発明者 米谷 起一 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社名古屋事業場内

⑦出願人 東レ株式会社 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

## 明細書

的性質に優れ、さらには極めて高い耐ヒートサイクル性、耐加水分解性を有する芳香族ポリエスチル樹脂組成物の製造方法に関する。

## &lt;従来の技術&gt;

ポリブチレンテレフタレートやポリエチレンテレフタレートに代表される芳香族ポリエスチル樹脂は、耐溶剤性などの化学的性質や物理的、機械的性質に優れ、さらにはガラス織維などの強化剤を用いることにより機械強度、耐熱性が大きく向上することから、自動車部品、機械機構部品、電気・電子機器部品等の幅広い分野に使用されている。

また、最近になって特開昭55-2130号公報、特開昭61-163956号公報などに開示されているエチレン系共重合体に不飽和カルボン酸またはその誘導体0.01~1.0重量%をグラフト共重合した変性エチレン系共重合体1~7.0重量部からなる樹脂組成物を製造するに際し、(A)、(B)および(C)を溶融混合した後、(D)を溶融混合することを特徴とする芳香族ポリエスチル樹脂組成物の製造方法。

## 1. 発明の名称

芳香族ポリエスチル樹脂組成物の製造方法

## 2. 特許請求の範囲

(A) 芳香族ポリエスチル100重量部に対し  
て

(B) 無機充填剤1~120重量部

(C) エポキシ化合物0.01~1.0重量部

(D) エチレン系共重合体に不飽和カルボン酸またはその誘導体0.01~1.0重量%をグラフト共重合した変性エチレン系共重合体1~7.0重量部からなる樹脂組成物を製造するに際し、

(A)、(B)および(C)を溶融混合した後、(D)を溶融混合することを特徴とする芳香族ポリエスチル樹脂組成物の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

## &lt;産業上の利用分野&gt;

本発明は、耐衝撃性、引張り強さなどの機械

的性質に優れ、さらには極めて高い耐ヒートサイクル性、耐加水分解性を有する芳香族ポリエスチル樹脂組成物の製造方法に関する。

多いガラス繊維に代表される無機充填剤を含有する芳香族ポリエステルにこのような耐衝撃技術を適用しても、その耐衝撃性の改良効果は小さなものであった。

そこで特開昭56-100845号公報に開示されるように、芳香族ポリエステルとガラス繊維をあらかじめ溶融混合した後、変性エチレン系共重合体を混合することにより、耐衝撃性の改良をはかるなどの試みがなされていた。

＜発明が解決しようとする問題点＞

しかしながら、これらの方法によつては押出機中でガラス繊維が折れたり、芳香族ポリエステルが熱分解するために得られた樹脂組成物の耐衝撃性はあまり改良されず、また引張り強度などの機械物性が低くなつたり、成形品の耐加水分解性が悪くなつたりするという問題があつた。

＜問題点を解決するための手段＞

そこで本発明者らは、ガラス繊維に代表される無機充填剤により強化した場合にも耐衝撃強

(A)、(B)および(C)を溶融混合した後、(D)を溶融混合することを特徴とする芳香族ポリエステル樹脂組成物の製造方法を提供するものである。

本発明で用いる芳香族ポリエステル(A)とは、芳香環を重合体の連鎖単位に有するポリエステルで、芳香族ジカルボン酸（あるいはそのエチル形成誘導体）とジオール（あるいはそのエチル形成誘導体）とを主成分とする重結合反応により得られる重合体ないし共重合体である。

ここでいう芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,2'-ビフェニルジカルボン酸、3,3'-ビフェニルジカルボン酸、4,4'-ビフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルメタジカルボン酸、4,4'-ジフェニルスルフォ

さ、引張り強さなどの機械的性質に優れ、良好な耐加水分解性を有する樹脂組成物を得るために試験した結果、芳香族ポリエステル、エポキシ化合物および無機充填剤を溶融混合した後に、不飽和カルボン酸またはその誘導体をグラフト共重合した変性エチレン系共重合体を溶融混合した場合には、上記の目的が達成されるばかりでなく、驚くべきことに耐ヒートサイクル性にも優れた樹脂組成物が得られることを発見し、本発明に到達した。

すなわち本発明は、

(A) 芳香族ポリエステル100重量部に対して

(B) 無機充填剤1~120重量部

(C) エポキシ化合物0.01~10重量部

(D) エチレン系共重合体に不飽和カルボン酸またはその誘導体0.01~10重量%をグラフト共重合した変性エチレン系共重合体1~70重量部からなる樹脂組成物を製造する際、

シジカルボン酸、4,4'-ジフェニルイソブロピリデンジカルボン酸、1,2-ビス(フェノキシ)エタン-4,4'-ジカルボン酸、2,5-アントラセンジカルボン酸、2,6-アントラセンジカルボン酸、4,4'-p-ターフエニレンジカルボン酸、2,5-ビリジンジカルボン酸などであり、テレフタル酸が好ましく使用できる。

これらの芳香族ジカルボン酸は2種以上を混合して使用してもよい。なお、少量であればこれらの芳香族ジカルボン酸とともに、アジピン酸、アゼライン酸、ドデカンジオン酸、セバシン酸などの脂肪族ジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸などの脂環族ジカルボン酸を一種以上混合して使用することができる。

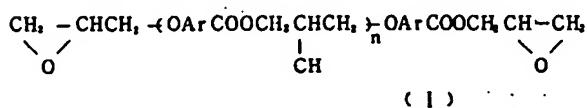
また、ジオール成分としては、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、1,5-ベンタジオール、ヘキシレングリコール、ネオベンチルグリコール、2-メチル-1,3-プロパンジオール、ジエチ

シグリコール、トリエチレングリコールなどの  
脂肪族ジオール、1,4-シクロヘキサンジオ  
ルなどの脂環族ジオールなどおよびそれ  
らの混合物などが挙げられる。なお少量であれ  
ば、分子量400～6,000の長鎖ジオール、  
すなわちポリエチレングリコール、ポリ-1,  
3-ブロピレングリコール、ポリテトラメチレ  
ングリコールなどを一種以上共重合せしめて  
よい。

具体的な芳香族ポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレン-1,2-ビス(フェノキシ)エタン-4,4'-ジカルボキシレートなどのほか、ポリエチレンイソフタレート/テレフタレート、ポリブチレンテレフタレート/イソフタレート、ポリブチレンテレフタレート/デカシジカルボキシレートなどの共重合ポリエステルが挙げられる。これらのうち機械的性質、

しい。1重盤部未溝では芳香族ポリエステルの機械物性の改良効果が充分でなく、また、120重量部を越えるとかえって機械物性の低下を招き好ましくない。

本発明で使用するエポキシ化合物（C）は、必ずしも限定されるものではないが、ビスフェノール-A-ジグリシジルエーテル、オルトフェニルフェニルグリシジルエーテルなどのグリシジルエーテル類や、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、テレフタル酸ジグリシジルエステル、イソフタル酸ジグリシジルエステルなどのグリシジルエステル類などが挙げられるが、下記一般式（1）で示される化合物が最も好ましい。



(ただし、式中 Ar は炭素数 6 ~ 20 の芳香族基または脂環基を、n は 0 または 1 ~ 20 の整

成形性などのバランスのとれたポリブチレンテレフタレートおよびポリエチレンテレフタレートが好ましく使用できる。

本発明において使用する芳香族ポリエスチルは、0.5%のオクロルフェノール溶液を25°Cで測定した相対粘度が1.15~2.0、特に1.3~1.85のものが好ましい。

本発明で用いる無機充填剤（B）は、特に限定されるものではないが、好ましくは、強化熱可塑性樹脂に一般に用いられているガラス繊維（シラン系カップリング剤等で表面処理されているものを含む）、炭素繊維、金属繊維、アスベスト、チタン酸カリウムウイスカ、ワラスティナイト、ガラスフレーク、ガラスピーツ、タルク、マイカ、クレー、炭酸カルシウム、硫酸カリウム、酸化チタン、酸化アルミニウムなどが挙げられ、中でもチヨップドストランドタイプのガラス繊維が最も好ましく用いられる。

無機充填剤の添加量は、芳香族ポリエステル 100 重量部に対して 1~120 重量部が好ま

数を示す。)

Ar の具体例としては、1.4-フェニレン、1.3-フェニレン、1.2-フェニレン、2-メチル-1.4-フェニレン、4.4'-ビフェニレン、3.3'-ビフェニレン、2.2'-ビフェニレン、3.4'-ビフェニレン、1.4-ナフチレン、1.5-ナフチレン、2.6-ナフチレン、2.7-ナフチレン、1.4-シクロヘキシレン、1.3-シクロヘキシレン、1.2-シクロヘキシレン、4.4'-ビシクロヘキシレン、2.6-デカヒドロナフチレンなどが好ましく挙げられ、なかでも1.4-フェニレン、1.3-フェニレンおよび2.6-ナフチレンが特に好ましい。

(1) 式の化合物の重合度  $n$  の値は、0 または 1 ~ 20 の整数であり、0 または 1 ~ 10 の整数が好ましく、また、各種の重合度を有する化合物の混合物であつてもよい。

特に好みいのは平均重合度が0~2の範囲にあり、質量平均分子量( $M_w$ )と、数平均分子量( $M_n$ )の比が1~2の範囲

子量 ( $M_n$ ) の比  $M_w/M_n$  が 1.0 ~ 3.0 の範囲にあるものである。(1) 式で示されるエポキシ化合物の製造方法は特に限定されるものではないが、例えば、ヒドロキシカルボン酸と、エビハロヒドリンとを 4 級アンモニウム塩、3 級アミン、3 級ホスフィンなどの触媒存在下、40 ~ 150 ℃で反応させて、ハロヒドリシエステルエーテル化を行い、次いでアルカリ金属塩を添加して脱ハロゲン化水素して製造する方法が挙げられる。重合度の高いものについては、さらに、ヒドロキシカルボン酸を触媒の存在下比率を変え反応させることにより得ることができる。

本発明におけるエポキシ化合物の添加量は、ポリエステル 100 重量部に対して 0.01 ~ 1.0 重量部、好ましくは 0.05 ~ 5 重量部、より好ましくは 0.2 ~ 3 重量部が望ましい。添加量が 0.01 重量部未満の場合は、芳香族ポリエステルの耐水分解性改良効果が充分でなく、一方 1.0 重量部を越える場合には、芳香族ポリエ

共重合体などに含まれる脂肪族二重結合の一部またはすべてを水素添加した重合体などであつて、具体的には、エチレン/プロピレン共重合体、エチレン/ブテン-1 共重合体、エチレン/ベンテン-1 共重合体、エチレン/4-メチルベンテン-1 共重合体、エチレン/プロピレン/エチリデンノルボーネン共重合体、エチレン/プロピレン/ジシクロベンタジエン共重合体、エチレン/ブテン-1/エチリデンノルボーネン共重合体、エチレン/エチルアクリレート共重合体、エチレン/ブチルアクリレート共重合体、エチレン/メチルメタクリレート共重合体、水溶ステレン-1-イソブレン-1-ステレン三元ブロック共重合体、水溶ステレン-1-ブタジエン-1-ステレンブロック共重合体などが挙げられる。

また用いる幹ポリマーは、ガラス転移温度が 30 ℃以下、好ましくは 0 ℃以下、より好ましくは -20 ℃以下であることが望ましい。さらに 190 ℃で測定したメルトフローレート (M

ステル樹脂の機械物性を損ねるためいずれも好ましくない。

本発明で用いる変性エチレン系共重合体 (D) は、エチレン系共重合体に不飽和カルボン酸またはその誘導体 0.01 ~ 1.0 重量%をグラフト共重合して得られるものである。

幹ポリマーとして用いるエチレン系共重合体としては、ガラス転移温度が 30 ℃以下であれば特に限定されるものでないが、好ましくは、エチレンとプロピレン、ブテン-1、ベンテン-1、4-メチルベンテン-1などのヨーオレフィンとの共重合体、ヨーオレフィンとさらに、1,4-ヘキサジエン、エチリデンノルボーネン、ジシクロベンタジエンなどの非共役ジエンを含有する共重合体、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、メチルメタクリレートなどのアルキルアクリレートまたはアルキルメタクリレートとの共重合体、酢酸ビニルとの共重合体、さらにはステレン-1-イソブレン-1-ステレン共重合体や、ステレン-1-ブタジエン-1-ステレン

F.R.) が 0.05 ~ 1.50 (単位 g/10 分) のものが好ましい。

特に好ましい幹ポリマーの例としては、エチレン/プロピレン共重合体およびエチレン/エチルアクリレート共重合体が挙げられる。

また、上記エチレン系共重合体にグラフト共重合する不飽和カルボン酸とは、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、5-ノルボーネン-2,3-ジカルボン酸、テトラヒドロフタル酸、ダイマー酸などが例として挙げられ、その誘導体としては上記の酸の無水物、エステル、アミド、イミド、塩などが挙げられる。具体的には、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水-5-ノルボーネン-2,3-ジカルボン酸、テトラヒドロフタル酸無水物、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸グリシジル、クロトン酸エチル、クロトン酸ブチル、クロトン酸グリシジル、マレイン酸

ジエチル、マレイン酸ジブチル、マレイン酸ジグリシジル、スマール酸ジエチル、スマール酸ジブチル、スマール酸ジグリシジル、イタコン酸ジエチル、イタコン酸ジブチル、イタコン酸ジグリシジル、5-ノルボーネン-2,3-ジカルボン酸ジエチル、5-ノルボーネン-2,3-ジカルボン酸ジグリシジル、テトラヒドロフタル酸ジエチル、テトラヒドロフタル酸ジブチル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジル、ダイマー酸ジエチル、ダイマー酸ジブチル、ダイマー酸ジグリシジル、アクリルアミド、メタクリルアミド、クロトンアミド、マレインアミド、スマールアミド、イタコンアミド、5-ノルボーネン-2,3-カルボンアミド、テトラヒドロフタルアミド、ダイマーアミド、N,N-ジメチルメタクリルアミド、N,N-ジメチルクロトンアミド、N,N,N',N'-テトラメチルマレインアミド、N,N,N',N'-テトラメチルフ

ましく挙げられる。

エチレン系共重合体に不飽和カルボン酸、またはその誘導体をグラフト共重合する方法はかならずしも限定されるものではないが、エチレン系共重合体をベンゼン、トルエン等の溶媒に加熱溶解せしめ、これに不飽和カルボン酸および/または不飽和カルボン酸誘導体、およびラジカル発生剤を添加反応させる方法、エチレン系共重合体、不飽和カルボン酸および/または不飽和カルボン酸誘導体およびラジカル発生剤を押出機、ニーダー等を用いて、溶融混練反応させる方法などが挙げられる。

グラフト共重合する不飽和カルボン酸または不飽和カルボン酸誘導体の量は、変性エチレン共重合体中0.01~1.0重量%、好ましくは0.1~3重量%である。グラフト量が0.01重量%未満では、芳香族ポリエステルの耐衝撃性改良効果が充分でなく、また1.0重量%を越える場合は、樹脂組成物の成形流動性が低下する問題がありいずれも好ましくない。

マールアミド、N,N,N',N'-テトラメチルイタコンアミド、N,N,N',N'-テトラメチル-5-ノルボーネン-2,3-カルボンアミド、N,N,N',N'-テトラメチルテトラヒドロフタルアミド、N,N,N',N'-テトラメチルダイマーイミド、マレインイミド、スマールイミド、イタコンイミド、5-ノルボーネン-2,3-カルボンイミド、テトラヒドロフタルイミド、N-フェニルマレインイミド、N-フェニルマーリイミド、N-フェニルイタコンイミド、N-フェニル-5-ノルボーネン-2,3-カルボンイミド、N-フェニルテトラヒドロフタルイミドなどが挙げられ、なかでも、アクリル酸、メタクリル酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸、テトラヒドロフタル酸無水物、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、マレイン酸ジグリシジル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジル、ダイマー酸ジグリシジル、アクリルアミド、メタクリルアミド、マレインイミド、N-フェニルマレインイミドなどが好

さらに少量であれば、そのほかのモノマー、例えばステレン、アクリロニトリル、ブタジエン等をグラフト成分モノマーとして同時に用いてよい。

本発明における(D)不飽和カルボン酸またはその誘導体0.01~1.0重量%をグラフト共重合した変性エチレン系共重合体の添加量は、芳香族ポリエステル1.00重量部に対して1~7.0重量部、好ましくは2~5.0重量部、より好ましくは3~4.0重量部である。添加量が1重量部未満では、芳香族ポリエステルの耐衝撃性の改良効果が充分でなく、7.0重量部を越えると、かえって芳香族ポリエステルの機械的特性を損なう傾向にありいずれも好ましくない。

本発明組成物は、(A)芳香族ポリエステル、(B)無機充填剤および(C)エポキシ化合物を溶融混練した後、(D)不飽和カルボン酸またはその誘導体0.01~1.0重量%をグラフト共重合したエチレン系共重合体を溶融混練した場合に最高の性能を発揮する。

すなわち、本発明の特徴は、上記本発明の製造方法に従つて（混合順序にしたがつて）芳香族ポリエスチル、無機充填剤、エポキシ化合物、<sup>変性</sup>エチレン系共重合体の樹脂組成物を製造したときに限つて、耐衝撃性、引張り強さなどの機械的性質に優れると共に、良好な耐ヒートサイクル性、耐加水分解性を有する芳香族ポリエスチル樹脂組成物が得られることにある。

例えば、（A）芳香族ポリエスチル、（B）無機充填剤、（C）エポキシ化合物および（D）変性エチレン系共重合体の4者を同時に溶融混合した場合には、耐衝撃性はもちろんのこと、優れた耐ヒートサイクル性を有した樹脂組成物は得られない。

さらに、（A）芳香族ポリエスチル、（B）無機充填剤を溶融混合した後、（D）変性エチレン系共重合体を溶融混合した場合には、ある程度耐衝撃性は向上するものの、引張り強度などの機械物性や、耐加水分解性に問題がある。

また、（A）芳香族ポリエスチル、（D）変

性能を発揮する。

さらに本発明組成物に対して、本発明の目的を損なわない範囲で、酸化防止剤、熱安定剤、紫外線吸収剤、滑剤、離型剤、染料、顔料を含む着色剤、核剤などの通常の添加剤を1種以上任意の時点で添加することができる。

また少量の熱可塑性樹脂（例えば、ポリフェニレンオキサイド、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリブロビレンなど）を同様に添加することもできる。

#### ＜実施例＞

以下実施例・比較例を挙げて本発明の効果をさらに詳述する。

#### 参考例1～2

表1に示す幹ポリマー100重量部に対して、無水マレイン酸またはグリシジルメタクリレート2重量部および1,3-ビズ(チープチルペルオキシー-1,3-プロピル)ベンゼン0.2重量部をV-ブレンダーでドライブレンドし、30℃メ2軸押出機を用いて、200℃で溶融混練後

性エチレン系共重合体を溶融混合した後、（B）無機充填剤、（C）エポキシ化合物を溶融混合した場合には、耐衝撃性、引張り強さなどの機械的性質が不十分な樹脂組成物しか得られない。

本発明の製造法にしたがえ（混合順序にしたがえ）具体的な溶融混合法は必ずしも限定されるものでないが、好ましくは、芳香族ポリエスチル、無機充填剤、エポキシ化合物の3者を押出機を使用して、溶融混合・ペレット化し、このペレットを変性エチレン系共重合体と共に再び押出機を使用して溶融混合する方法や、押出機の吐出口から最も遠いホッパーより芳香族ポリエスチル、無機充填剤、エポキシ化合物の3者を投入し、吐出口に近いホッパーより変性エチレン系共重合体を加る方法などが挙げられる。

本発明により得られた樹脂組成物は、射出成形、押出成形などの通常の方法で容易に成形することができる、得られた成形品は優れた

ペレット化し、変性エチレン系共重合体（イ）および（ロ）を製造した。

得られたペレットについて、ソツクスレー抽出機を用いて、未反応のカルボン酸誘導体を抽出後、IRスペクトルによつてグラフト率を定量した。結果を表1に示す。

表 1

| 例 | 幹ポリマー                     |                | 不飽和カルボン酸<br>誘導体グラフト率<br>(重量%) | 変性エチレン系共重合体記号 |
|---|---------------------------|----------------|-------------------------------|---------------|
|   | 組成<br>(重量比)               | MFR<br>(g/10分) |                               |               |
| 1 | エチレン/プロピレン<br>(72/28)     | 2.5            | グリシジルメタクリレート<br>(1.4)         | (イ)           |
| 2 | エチレン/エチルアクリレート<br>(76/24) | 1.0            | 無水マレイン酸<br>(1.6)              | (ロ)           |

#### 実施例1

相対粘度1.45のポリブチレンテレフタレート7.5重量部に対して、ガラス繊維（3mm長、チヨップドストランドタイプ）1.5重量部、エポキシ化合物（ハ）1重量部をV-ブレンダー

にてドライブレンド後、30回 $\times$ 2軸押出機を用いて、250℃で溶融混練後ペレット化した。

このペレット91重量部を、130℃で5時間乾燥後、参考例1にて製造した変性エチレン系共重合体(イ)10重量部をドライブレンドし、再び30mm×2軸押出機を用いて、250℃で溶融混練後ペレット化した。

このペレットを130℃で5時間乾燥後、250℃に設定した5オンスのスクリューインランイン型射出成形機を用いて金型温度80℃、成形サイクル（射出時間／冷却時間／中間時間）15秒／20秒／10秒で成形し、ASTM1号ダンベル、1/8"幅アイソツト衝撃試験片を各々得るとともに、金型内に樹脂を充填するに必要な最小圧力である成形下限圧（ゲージ圧）を測定した。

得られた、ASTM 1号ダシベルについて、  
100°C熱水中15日間の熱水処理試験を、ま  
た、150°Cで2時間、ひき続き-40°Cで2  
時間を1サイクルとして、150サイクルの熱

衝撃を与えるヒートサイクル試験を行った。

得られた試験片について、ASTM D-6  
38にしたがい引張り試験を、ASTM D-  
256にしたがいアイゾフト試験を行つた。結  
果を表2に示す。

(エポキシ化合物)

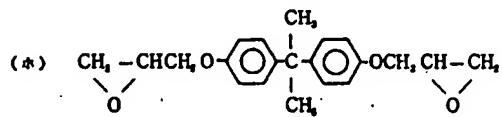
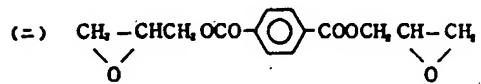
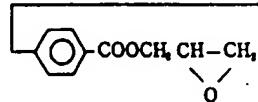
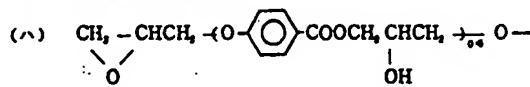


表 2

| 例           | 成形 <sup>※1</sup><br>下限圧<br>(kg f/cm <sup>2</sup> ) | 衝撃<br>強度<br>(kg f/cm <sup>2</sup> ) | 引張強度 (kg f/cm <sup>2</sup> ) |       |              |
|-------------|--|-------------------------------------|------------------------------|-------|--------------|
|             |  |                                     | 未処理品                         | 熱水処理品 | ヒートサ<br>イクル品 |
| 実<br>施<br>例 | 1  | 51                                  | 19.0                         | 810   | 765          |
|             | 2  | 42                                  | 18.7                         | 840   | 780          |
|             | 3  | 69                                  | 16.8                         | 800   | 740          |
|             | 4  | 56                                  | 15.6                         | 780   | 725          |
| 比較<br>例     | 1  | 59                                  | 12.3                         | 760   | 350          |
|             | 2  | 62                                  | 7.8                          | 470   | 440          |
|             | 3  | 58                                  | 7.7                          | 555   | 480          |
|             | 4  | 57                                  | 6.5                          | 515   | 445          |

注:※! 成形下限圧: 値が小さい程、成形時の流動性が良好。

寒梅例 2~4、比較例 1~4

また実施例1において、変性エチレン系共重合体を(ロ)に変えたのみの例(実施例2)、使用するエポキシ化合物を(ニ)に変えたのみの例(実施例3)および(ホ)に変えたのみの例(実施例4)についても、実施例1と同様にして、溶融混合、成形・評価を行つた。結果を表2に示す。

さらにエポキシ化合物(ハ)未添加の例(比較例1)、実施例1の混合順序を変えた例、すなわち、PBT、ガラス繊維、変性エチレン共重合体(イ)およびエポキシ化合物(ハ)を同時にドライブレンドした例(比較例2)、PBTと変性エチレン系共重合体(イ)を溶融混合、ペレット化後、このペレットに対して、ガラス繊維とエポキシ化合物(ハ)を溶融混合した例(比較例3)、PBT、ガラス繊維および変性エチレン系共重合体(イ)を溶融混練ペレット化後、このペレットに対してエポキシ化合物(ハ)を溶融混練した例(比較例4)について

も実施例1と同様にして成形評価を行つた。結果を表2に示す。

表2の結果から明らかなように、本発明の混合順序にしたがつて製造した場合(実施例1～4)には成形品の引張り強度、衝撃強度が優れるばかりでなく、耐加水分解性、耐ヒートサイクル性も極めて良好であり、中でもエポキシ化合物(ハ)を使用した場合の性能が最も優れることがわかる。

これに対し、エポキシ化合物未添加の場合(比較例1)や、本発明の混合順序と異なる場合(比較例2～4)には機械的性質が低いばかりでなく、耐加水分解性、耐ヒートサイクル性も劣っている。

#### <発明の効果>

本発明によつて製造された組成物の与える成形品は、衝撃強度、引張り強度に代表される機械物性に優れるばかりでなく、耐加水分解性、耐ヒートサイクル性も極めて良好であり、機械機器部品、自動車部品等の用途に有用である。

特許出願人 東レ株式会社